

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-346867

(43)Date of publication of application : 05.12.2003

(51)Int.Cl.

H01M 8/24  
H01M 8/02  
// H01M 8/10

(21)Application number : 2002-153070

(71)Applicant : SEIKO EPSON CORP

(22)Date of filing : 27.05.2002

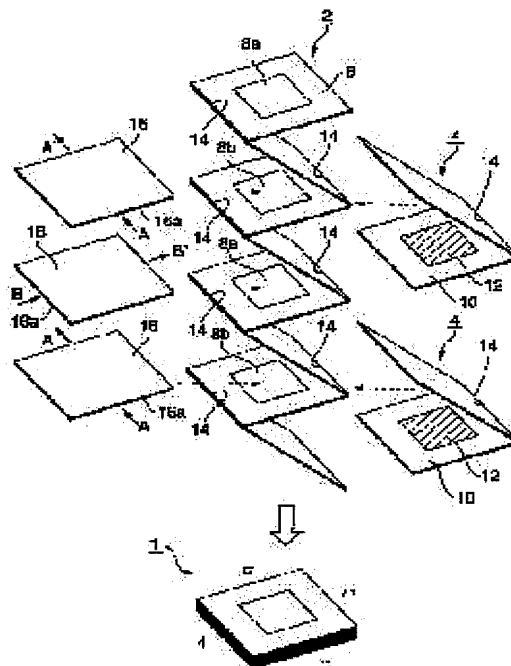
(72)Inventor : FUJIMORI YUJI  
KASAHARA YUKIO  
MIYAMOTO TSUTOMU

## (54) FUEL CELL AND ITS MANUFACTURING METHOD

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a fuel cell attaining miniaturization, thinning, and large output at the same time, and to provide its manufacturing method.

**SOLUTION:** This fuel cell is provided with a membrane/electrode joined body formed by joining a catalyst electrode 8 on one surface of a membrane base material 6, a membrane/electrolyte complex 4 formed with an electrolyte layer 12 on one surface of a membrane base material 10 different from the membrane base material 2, and diffusion layers 16 and 18 for supplying gas or liquid to the catalyst electrode 8. This fuel cell is formed by interposing the membrane/electrolyte complex 4 and the diffusion layers 16 and 18 between a laminated structure formed by repeatedly folding down and up prescribed parts of the membrane/electrode joined body 2.



\* NOTICES \*

JP0 and INP1T are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

- [Claim(s)]
- [Claim 1]The film/electrode conjugate to which a catalyst electrode was joined by one field of a film-like substrate, and the film/electrolyte complex in which an electrolyte layer was formed in one field of a different film-like substrate from said film-like substrate, A fuel cell having made a laminated structure body which had a diffusion zone for supplying gas or a fluid to said catalyst electrode, repeated crest folding and trough folding and formed a predetermined place of said film/electrode conjugate intervene, and forming said film / electrolyte complex, and said diffusion zone in it.
- [Claim 2]The fuel cell according to claim 1, wherein two fuel electrodes and two air poles are formed by turns on said film / electrode conjugate surface.
- [Claim 3]The fuel cell according to claim 1 or 2, wherein an air pole is formed in both ends on said film / electrode conjugate surface.
- [Claim 4]The fuel cell according to any one of claims 1 to 3, wherein an air pole and a fuel electrode are formed at least one or more constitutional units on said film / electrode conjugate surface by making an air pole, a fuel electrode, a fuel electrode, and an air pole into one constitutional unit.
- [Claim 5]The fuel cell according to claim 1 or 2, wherein a fuel electrode is formed in both ends on said film / electrode conjugate surface.
- [Claim 6]The fuel cell according to any one of claims 1 to 3, wherein an air pole and a fuel electrode are formed at least one or more constitutional units on said film / electrode conjugate surface by making a fuel electrode, an air pole, an air pole, and a fuel electrode into one constitutional unit.
- [Claim 7]A fuel cell given in claims 1-6, wherein it replaces with said catalyst electrode and a diffusion zone which has conductivity is formed on said film / electrode conjugate surface.
- [Claim 8]The fuel cell according to any one of claims 1 to 7, wherein said film/electrolyte complex are formed in said film/electrode conjugate, and one.
- [Claim 9]The fuel cell according to any one of claims 1 to 7 with which said film/electrolyte complex make it to be formed in a different body with the feature said film/electrode conjugate.
- [Claim 10]The fuel cell according to any one of claims 1 to 9, wherein it bends said film/electrode conjugate between each catalyst electrode joined on the film / the electrode conjugate surface concerned and a part is formed.
- [Claim 11]The fuel cell according to claim 10, wherein said bending part is a slot, a slit, a breakthrough, perforations, or a hollow.
- [Claim 12]The fuel cell according to any one of claims 1 to 11, wherein said film-like substrate is chosen from polyamide, polyethylene, polyester, and polypropylene.
- [Claim 13]The fuel cell according to any one of claims 1 to 12, wherein said electrolyte consists of PTFE (polytetrafluoroethylene) with which a proton transported material was impregnated.
- [Claim 14]The fuel cell according to any one of claims 1 to 13, wherein it is placed between direction from which a feed hopper of the diffusion zone concerned differs in said fuel electrode and said air pole by said diffusion zone.
- [Claim 15]The fuel cell according to claim 14 with which said diffusion zone is characterized by being placed between rectangular directions in said fuel electrode and said air pole by feed hopper currently formed in the diffusion zone concerned.
- [Claim 16]The fuel cell according to any one of claims 1 to 16, wherein a mark or a breakthrough for positioning is formed in said film/electrode conjugate.

[Claim 17]A manufacturing method of a fuel cell characterized by comprising the following.  
A process of joining a catalyst electrode to one field of a film-like substrate, and manufacturing a film/electrode conjugate.

A process of forming an electrolyte layer in one field of a different film-like substrate from said film-like substrate, and manufacturing a film/electrolyte complex.

A process of bending to said film/electrode conjugate, and forming a part.

A process which makes said film/electrolyte complex placed between said film/electrode conjugate in which crest folding, a process which carries out trough folding, and said catalyst electrode are not formed in the solid-electrolyte membrane/the electrode conjugate concerned, and a process which makes a diffusion zone placed between said film/electrode conjugate in which said catalyst electrode is formed.

[Claim 18]The fuel cell according to claim 17, wherein the bending part concerned forms a slot, a slit, a breakthrough, perforations, or a hollow in a process of forming said bending part.

[Claim 19]A manufacturing method of the fuel cell according to claim 17 making it placed between direction from which a feed hopper currently formed in the diffusion zone concerned differs in said fuel electrode and said air pole in a process between which said diffusion zone is made to be placed.

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and INPIIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

- [0001]  
[Field of the Invention] Especially this invention relates to the fuel cell etc. which reconciled a miniaturization and high power about a fuel cell and a manufacturing method for the same.
- [0002]  
[Description of the Prior Art] A fuel electrode (anode pole), an electrolyte, and an air pole (cathode pole) are laminated and constituted, and a fuel cell supplies hydrogen to a fuel electrode, and supplies oxygen to an air pole. The free energy change of a chemical reaction (anode:  $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ , cathode:  $1/2O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O$ ) is directly taken out as electrical energy. Since a fuel cell is clean energy which does not use a fossil fuel, it attracts attention as an environmental harmony type power supply which contributes to carbon-dioxide-emissions reduction.
- [0003] Especially, since the polymer electrolyte fuel cell (PEFC) which uses solid polymer membrane for an electrolyte has the large output in low temperature, the utilization as a small household power supply, a portable power supply, and a power supply for mobiles is considered. As for the direct methanol fuel cell (DMFC) which is PEFC of the form directly reformed inside a cell, utilization is considered in methanol fuel.
- [0004] Although rechargeable batteries, such as a lithium ion battery, were in use as a power supply of portable devices, such as a cellular phone, until now, these days, the development for using PEFC and DMFC as a power supply of a portable device is made. Since PEFC and DMFC have unnecessary charge, and continuous use is possible if continuous supply of the fuel is carried out, if put in practical use, it is expected that the continuous use time of the power supply of a portable device will become remarkably long.
- [0005] It is possible not to produce waste compared with rechargeable batteries, such as a lithium ion battery, and to use repeatedly only by supplement of fuel.
- [0006]  
[Problem(s) to be Solved by the Invention] Thus, when it is going to apply PEFC as a power supply of a portable device, it is necessary to miniaturize and slim down PEFC.
- [0007] However, since the output of a cell is proportional to the sum total surface area of a cell even if size of each component parts of the conventional large-sized PEFC is made small, respectively and it only miniaturizes, it is difficult to obtain sufficient output.
- [0008] On the other hand, in order to raise output quantity, also making the number of laminations of a cell (the number of stacks) increase is considered, but when the number of stacks is made to increase, it is difficult [it] for many parts for stacking, such as a separator, to be also needed, and to realize slimming down. If the number of stacks increases, the number of fabrication processes will increase and manufacture will become complicated.
- [0009] Then, this invention provides a fuel cell which reconciled a miniaturization and slimming down, and high power, and a manufacturing method for the same.
- [0010]  
[Means for Solving the Problem] The film/electrode conjugate to which a catalyst electrode was joined by one field of a film-like substrate as for this invention. The film/electrolyte complex in which an electrolyte layer was formed in one field of a different film-like substrate from said film-like substrate, It has a diffusion zone for supplying gas or a fluid to said catalyst electrode, and a fuel

cell having made said film / electrolyte complex, and said diffusion zone placed between laminated structure bodies which repeated crest folding and trough folding and formed a predetermined place of said film/electrode conjugate, and forming in them is provided.

[0011] Thus, if a diffusion zone is inserted between two catalyst electrodes folded by turning up a film-like substrate, and forming so that an electrolyte may be put between them, two catalyst electrodes can share one diffusion zone. As a result, the number of parts can be reduced and slimming down can be realized.

[0012] Although thickness of a fuel cell of this invention changes also with thickness or the number of times to turn up of a film used as a substrate, it can be used as an ultra thin type (about 0.5 mm - 20 mm). Although a size in particular is not limited, it can be made micro [ten-yen coin size (2.3 cm / in width / x2.3 cmx3 mm in height)], for example, [in length] When it microminiaturizes in this way, even if the air pole side is only opened and it does not establish a feed mechanism in particular of oxygen, air (oxygen) is supplied to an air pole from the circumference of a fuel cell, and also heat dissipation and gas conditioning have the merit of being unnecessary.

[0013] Said fuel cell is provided with the following.

As said diffusion zone, it is a fuel diffusion zone.

Air diffusion layer.

[0014] It is for a fuel diffusion zone supplying fuel to a fuel electrode, and an air diffusion layer is for supplying oxygen to an air pole. To said fuel electrode, it is preferred that hydrogen or methanol solution is supplied as fuel. On the other hand, said air pole can use oxygen contained in air in the atmosphere.

[0015] As for a fuel electrode formed in said film/electrode conjugate, and an air pole, it is preferred that two fuel electrodes and two air poles are formed by turns. That is, when an air pole (cathode) is set to K and a fuel electrode (anode) is set to A, it is preferred to form in one field of said film/electrode conjugate like AAKKAAKK--.

[0016] Especially a thing for which an air pole is formed in both ends on said film / electrode conjugate surface is preferred. That is, especially a thing for which a cathode (K) and an anode (A) are formed in order like K-AAKKA--K is preferred.

[0017] It can be made to function as an air pole (cathode), without a catalyst electrode of both ends of said film-like substrate inserting an air diffusion layer by constituting in this way. That is, since oxygen can be supplied by natural opening, an air diffusion layer can be omitted and slimming down can be attained. A catalyst electrode (2 sets of AA, and 1 set of KK) inserted into the cathode K of both ends, Since it will be in the state where it lies one upon another when said film/electrode conjugate are bent, Slimming down is realizable, as a result of two catalyst electrodes' being able to share one diffusion zone now and also being able to reduce the number of parts, if a diffusion zone is inserted between two catalyst electrodes (AA or KK).

[0018] In addition, an air pole and a fuel electrode can be formed at least one or more constitutional units on said film / electrode conjugate surface by making an air pole, a fuel electrode, a fuel electrode, and an air pole into one constitutional unit. Namely, it can also be referred to as KAAK and that constitutional unit can also be made into 1 (KAAK), 2 (KAAKAAK), or 3 (KAAKAAKAAK--)

or more by making this KAAK into one constitutional unit.

[0019] An order of the above-mentioned air pole and a fuel electrode can be made reverse, and a fuel electrode can also be formed in both ends on said film / electrode conjugate surface. That is, a cathode (K) and an anode (A) can also be formed in order like A--KAAKK--A.

[0020] In addition, an air pole and a fuel electrode can also be formed on said film / electrode conjugate surface in order of a fuel electrode, an air pole, and a fuel electrode. Namely, it can also be referred to as AKKA and that constitutional unit can also be made into 1 (AKKA), 2 (AKKAAKKA), or 3 (AKKAAKKA--)

or more by making this AKKA into one constitutional unit.

[0021] Said film/electrode conjugate can also form a fuel electrode (anode A) and one air pole (cathode K) at a time by turns. That is, it can also form in one field of said film/electrode conjugate in order of KAKAKAKA.

[0022] Also in which above-mentioned composition, as for a catalyst electrode, although it can also join to band-like in succession in one field of a film-like substrate, it is preferred to vacate a predetermined interval for a film-like substrate and to form intermittently from a viewpoint of

preventing cross leakage (crossover).

[0023]On said film / electrode conjugate surface, it can replace with said catalyst electrode and a diffusion zone which has conductivity can also be formed.

[0024][By constituting in this way, it becomes unnecessary to constitute a diffusion zone in a different body, and slimming down can be attained. If construction material (for example, catalyst of carbon, a carbon fiber, a carbon nanotube, platinum, a platinum-ruthenium alloy, etc., etc.) which has conductivity is chosen as a diffusion zone, Since the diffusion zone concerned can exhibit a function as a catalyst electrode, a catalyst electrode joined to a film-like substrate is also omissible.

[0025]As said diffusion zone, if gas or a fluid can be passed, there will be no restriction in particular, and a plate which has mesh structure, a plate containing a slit, a plate which formed a slot by etching, a fibrous object, etc. can be used.

[0026]Forming in said film/electrode conjugate, and one can also form said film/electrolyte complex in a different body.

[0027]As for said film/electrode conjugate, it is preferred that bend between each catalyst electrode joined to this, and a part is formed.

[0028]A part where a bending part here becomes what defines the bending position about said film/electrode conjugate crest folding or when carrying out trough folding is said. Although various the bending parts concerned are considered, it is preferred that it is a slot, a hollow, etc. which made thin beforehand thickness of a slit, a breakthrough, perforations, and said film/zygate for example.

[0029]In order to insert in correctly the film/the electrode conjugate concerned, it is preferred to form an alignment mark for positioning in a rear surface of said film/electrode conjugate or at least one field. Temporarily, as for a position of the mark concerned, supposing one catalyst electrode is joined on a film-like substrate of one sheet, it is preferred to be formed in all of four corners of the film-like substrate concerned or at least one place. This alignment mark can be formed by printing patterns, such as a cross joint, x seal, and O seal, for example.

[0030]It can also position by providing a breakthrough which can make a pin etc. penetrate, when a film/electrode conjugate is inserted in and a laminated structure is formed, and inserting this pin in the breakthrough concerned. In this case, it cannot be overemphasized that the above-mentioned breakthrough is provided also in said film / electrolyte complex inserted in the film/the electrode conjugate concerned, and said diffusion zone.

[0031][By constituting as mentioned above, work at the time of bending said film/electrode conjugate becomes easy, and positioning of bending can also be performed correctly. Shape after bending can be made stability.

[0032]Said film-like substrate can be chosen from a raw material which has the electrical insulation of polyamide, polyethylene, polyester, polypropylene, etc. As for these film-like substrates, it is preferred to provide fine pores for giving permeability, or to consider it as mesh state and porous \*\*. Although permeability can also be given to the whole substrate, it is more preferred to give permeability only to a portion in which a catalyst electrode and an electrolyte layer are formed from a viewpoint of giving a function as a separator to a film-like substrate.

[0033]As a result of a film-like substrate's also being able to play a role of a separator and reducing part mark by this, slimming down can be attained further.

[0034]Said film-like substrate can also be an electrolyte. As the electrolyte concerned, what can take a film-like gestalt is preferred, for example, it is preferred that it is solid polymer membrane. As solid polymer membrane, a fluorine ion system ion-exchange membrane, a partial fluorination system ion-exchange membrane, a hydrocarbon system ion-exchange membrane, an organic-inorganic hybrid ion-exchange membrane, an electrolyte impregnating ion-exchange membrane, mixed-ions exchange membrane, etc. can be mentioned.

[0035]As for said especially solid polymer membrane, it is preferred that a proton transported material consists of impregnated PTFE (polytetrafluoroethylene). Since it has moderate intensity, ductility, elasticity, hardness, and rigidity, when such solid polymer membrane constitutes a fuel cell of this invention, it is preferred. As a proton transported material, perfluoro sulfonic acid system polymers are preferred, for example. As solid polymer membrane, a FUEOMIN film (Asahi Glass Co., Ltd. brand name), the Nafion film (Du Pont brand name), etc. are used suitably, for example.

[0036]Platinum can be used as said catalyst electrode. It is preferred to use a platinum-ruthenium alloy which supported a ruthenium to platinum for a functioning electrode from a viewpoint of

preventing poisoning by carbon monoxide (CO) as a fuel electrode (anode).

[0037]As for said diffusion zone, it is preferred to be placed between different direction in said fuel electrode and said air pole by feed hopper of the diffusion zone concerned. It is more preferred to be especially placed between rectangular directions by feed hopper of the diffusion zone concerned in said fuel electrode and said air pole.

[0038][By constituting in this way, structure can be simplified and fuel (hydrogen) or air (oxygen) can be certainly supplied also with a thin shape. That is, when a fuel cell of this invention is folded up and a laminated structure is constituted, four sides will newly be formed, but since a fuel cell of this invention has a thin shape, structure will become complicated if a feed hopper is established in the same field (uniform direction). Then, as for an air supply port, as shown in the fuel cell 1 shown under drawing 2, when four newly formed sides were made into I, RO, Ha, and NI, respectively and a fuel supply port is established in a field of I, it is preferred to provide in fields other than I, i.e., RO, Ha, or NI. Providing in RO or NI especially is preferred.

[0039]A process of this invention joining a catalyst electrode to one field of a film-like substrate, and manufacturing a film/electrode conjugate, An electrolyte layer is formed in one field of a different film-like substrate from said film-like substrate, A process of manufacturing a film/electrolyte complex, and a process of bending to said film/electrode conjugate, and forming a part, A process which makes said film/electrolyte complex placed between said film/electrode conjugate in which crest folding, a process which carries out trough folding, and said catalyst electrode are not formed in the solid-electrolyte membrane/the electrode conjugate concerned, A manufacturing method of a fuel cell which includes a process between which a diffusion zone is made to be placed in said film/electrode conjugate in which said catalyst electrode is formed is provided.

[0040][By considering it as such a manufacturing method, a fuel cell which reconciled a miniaturization and high power can be manufactured simply. By adjusting a method of a straight part (bending position in a film/electrode conjugate), the straight number of times, and bending work, etc. in a process of bending a film/electrode conjugate, Since size and an output of a small fuel cell to manufacture can be adjusted, a fuel cell of various sizes or an output can be manufactured easily.

Since a catalyst electrode is formed only in one field, it can manufacture easily.

[0041]Although the catalyst electrode can follow band-like and can also be formed in a making process of said film/electrode conjugate, It is desirable when not forming in a part (bending part) in which a hole on a film-like substrate was formed, but being intermittently formed on a solid-electrolyte membrane takes into consideration a viewpoint and a manufacturing cost which prevent cross leakage (crossover). It may join by printing a catalyst electrode which formed membranes beforehand on a film-like substrate, or pressing, or junction of a catalyst electrode to a film-like substrate may be directly formed by sputtering process on a film-like substrate.

[0042]Although an electrolyte layer can be formed in one field of a different film-like substrate from said film-like substrate and said film-like substrate and a different substrate can also be chosen in a process of manufacturing a film/electrolyte complex, it is desirable when a direction which chooses the same substrate takes a manufacturing cost into consideration. Formation of an electrolyte layer to a film-like substrate uses a mask for a film-like substrate for electrolyte layers, such as PTFE (polytetrafluoroethylene) beforehand molded in a predetermined size, and is printing etc. It can form by carrying out. If a catalyst electrode is joined to both sides of a film/electrolyte complex instead of joining a catalyst electrode to a film-like substrate, work which joins a catalyst electrode in said process is also omissible.

[0043]In a process of forming said bending part, As for the bending part concerned, providing between said catalyst electrodes is preferred, A slit, perforations, a breakthrough, etc. may be beforehand formed in a bending part in a film/electrode conjugate, or a slot, a hollow, etc. which make thickness of the film/electrode conjugate thin beforehand in a bending part may be formed. As long as it is before said straight process, it may carry out before a making process of a film/electrode conjugate.

[0044]If it does in this way, straight working will become easy and positioning of bending will also become exact. If it does in this way, it is stabilized more and shape after bending can be maintained.

[0045]In said crest folding and trough folding process, a hole provided in the film/electrode conjugate is inserted in zigzag, repeating crest folding and trough folding to a mark. In order to insert in correctly the film/the electrode conjugate concerned at this time, it is preferred to form an alignment

mark for positioning in a rear surface of said film/electrode conjugate or at least one field. Temporarily, as for a position of the mark concerned, supposing one catalyst electrode is joined on a film-like substrate of one sheet, it is preferred to be formed in all of four corners of the film-like substrate concerned or at least one place. This alignment mark can be formed by printing patterns, such as a cross joint, x seal, and O seal, for example.

[0046]It can also position by providing a breakthrough which can make a pin etc. penetrate, when a film/electrode conjugate is inserted in and a laminated structure is formed, and inserting this pin in the breakthrough concerned. In this case, it cannot be overemphasized that the above-mentioned breakthrough is provided also in said film / electrode complex inserted in the film/the electrode conjugate concerned, and a diffusion zone mentioned later.

[0047]Even if a process between which said diffusion zone is made to be placed is a process of fabricating a diffusion zone to said film/electrode conjugate which was able to be bent, and one, it may be a process formed in a different body. Here, as for a feed hopper currently formed in the diffusion zone concerned, it is more preferred that you make it placed between different direction in said fuel electrode and said air pole from a viewpoint of supplying fuel (hydrogen) and air (oxygen) certainly.

[0048][Embodiment of the Invention]Hereafter, an embodiment of the invention is described, referring to drawings.

[0049][Embodiment 1] Drawing 1 is a development view of a film / electrode conjugate, and a film/electrolyte complex used for the fuel cell concerning this invention. The film / electrode conjugate (a "zygote" is called hereafter) 2, and the film/electrolyte complex 4 (a "complex" is called hereafter) concerning Embodiment 1 is shown in drawing 1 (a).

[0050]As shown in drawing 1 (a), the zygote 2 comprises the film-like substrate 6 and the catalyst electrode 8 joined on one field of the film-like substrate 6 concerned. Both the film-like substrate 6 of said zygote 2 and the film-like substrate 10 of said complex 4 consist of nylon, and are formed in the different body, respectively. Although not illustrated, the fine pores for giving permeability are provided in the portion in which the catalyst electrode and electrolyte layer of the film-like substrate 10 concerned are formed.

[0051]A total of the eight catalyst electrodes 8 is joined with the predetermined interval on the film-like substrate 6, respectively. This catalyst electrode 8 consists of the air pole 8a which supported platinum (Pt), and the fuel electrode 8b which supported platinum (Pt) and a ruthenium (Ru), and the air pole 8a (cathode K) and the fuel electrode 8b (anode A) cover it over the right from the left in drawing 1, and it is formed in order of KAAKKAAK.

[0052]On the other hand, the complex 4 consists of the film-like substrate 10 and the electrolyte layer 12 formed on concerned one [ film-like substrate 10 ] field. The film-like substrate 10 of the complex 4 concerned is formed shorter than the film-like substrate 6 of said zygote 2, and the two complexes 4 are formed independently [ said zygote 2 ]. The two electrolyte layers 12 are formed at a time with the predetermined interval on the film-like substrate 10, respectively. This electrolyte layer 12 consists of PTFE (polytetrafluoroethylene) with which the proton transported material was impregnated. The slot 14 is formed in the film-like substrates 6 and 10 with the prescribed interval. [0053]As shown in drawing 2, said zygote 2 is positioned by the slot 14, repeats crest folding and trough folding, and is bent by zigzag shape. By having been bent, among both fuel electrode 8b, the fuel diffusion zone 16 is inserted among the catalyst electrodes 8 which face mutually, and the air diffusion layer 18 is inserted among both air pole 8a.

[0054]It has the fuel supply port 16a which supplies fuel in said fuel diffusion zone 16, and fuel is supplied to it in the direction of A->A' from the fuel supply port 16a concerned. It has the air supply port 18a which supplies air in said air diffusion layer 18, and air (oxygen) is supplied to it in the direction of B->B' from the air supply port 18a concerned. This fuel diffusion zone 16 and air diffusion layer 18 consist of metal form of a mesh, for example, the porous membrane which consists of steel wool. The fuel diffusion zone 16 and the air diffusion layer 18 are arranged in the direction from which a feed hopper differs, as shown in drawing 2. On the other hand, the complex 4 is bent in the position determined by the slot 14 so that the electrolyte layer 12 may become inside. And from a field (right-hand side in drawing 2) opposite to the field where the catalyst electrode 8 (8a, 8b) is joined, it is inserted so that the electrolyte layer 12 may contact the zygote 2. In that case, the

complex 4 is inserted so that the bending position of the complex 4 may contact the bending position of the topmost part and the bottom of the zygote 2 among drawing 2, and the fuel cell 1 is formed. [0055]It is not necessary to insert said air diffusion layer 18 in the air pole 8a located in the highest rung in drawing 2, and the air pole 8a (not shown) located in the bottom, and air (oxygen) can be supplied to the air pole 8a by natural opening. The collecting member which is not illustrated, respectively is provided in the fuel diffusion zone 16 and the air diffusion layer 18.

[0056]Next, operation of the fuel cell 1 of Embodiment 1 is explained, referring to drawing 2 and drawing 10.

[0057]If the methanol tank 21 is filled up with the methanol solution (for example, 3% solution of methanol) which is fuel and the pump 23 is operated as shown in drawing 10, Methanol solution is led to the fuel diffusion zone 16 through the mixing tank 22, the supply tube 24a, and the fuel supply port 16a shown in drawing 2. Under the present circumstances, the pump 23 is operated so that the inside of the fuel diffusion zone 16 may serve as positive pressure. The methanol solution led to the fuel supply port 16a is led to the fuel electrode 8b, diffusing the fuel diffusion zone 16 and being changed into hydrogen (refining). On the other hand, air (oxygen) is drawn in the direction (or the opposite direction) of B->B' of drawing 10 and C, and the direction of D, and the air diffusion layer 18 diffuses the inside of the air diffusion layer 18, and is led to the air pole 8a. The output from the fuel cell 1 obtained by this is taken out through said collecting member (not shown). From said fuel outlet (not shown), intact methanol solution and by-product flow back on the mixing tank 22 through the discharge tube 24b. The methanol tank 21 may be an exchangeable fuel cartridge suitably.

[0058]Since the large surface area of a cell can be taken by constituting as mentioned above, high power can be obtained though it is small. The topmost part and the bottom have an unnecessary air diffusion layer as an open pole, and slimming down is realizable as a result of being able to reduce the number of parts, since two catalyst electrodes can share one diffusion zone now.

(Embodiment 2) Embodiment 2 differs in the point which the zygote 30 and really formed the complex 32 in Embodiment 1. The development view of the zygote 30 concerning Embodiment 2 is shown in drawing 1 (b). According to this embodiment, the complex 32 is formed in the upper part of the catalyst electrode located in the 2nd and the 6th from the drawing left of the zygote 30, and the lower part of the catalyst electrode located in the 3rd and the 7th from the drawing left in one.

[0059]The exploded perspective view of the fuel cell 1 using the zygote 30 concerning this embodiment is shown in drawing 3. The zygote 30 concerning this embodiment is inserted into the field where the complexes 32a and 32b in which the electrolyte layer 12 was formed are opposite to the field where the catalyst electrode (the air pole 8a, the fuel electrode 8b) was joined as shown in drawing 3. In drawing 3, the complex of 32a is inserted in from the drawing this side to the back, and the complex of 32b is inserted in from the drawing back to this side. Simultaneously, the fuel diffusion zone 16 and the air diffusion layer 18 are inserted in the zygote 30 in the same way as Embodiment 1, and the fuel cell 1 is formed.

(Embodiment 3) Embodiment 3 differs in the position which makes the complex 32 in Embodiment 2 really form in a zygote in Embodiment 2. The development view of the zygote 40 concerning Embodiment 3 is shown in drawing 1 (c). According to this embodiment, the complex 42 is formed in the upper part of the catalyst electrode located in the 2nd and the 6th from the drawing left of the zygote 40, and the lower part of the catalyst electrode located in the 4th and the 8th from the drawing left in one. Since how to insert in the zygote 40 and the complex 42 is the same as that of said Embodiment 2, explanation is omitted (refer to drawing 3).

(Embodiment 4) Embodiment 4 differs in the point which formed the complex 4 in Embodiment 1 respectively every electrolyte layer 12 in Embodiment 1. The development view of the zygote 2 concerning Embodiment 4 and the complex 44 is shown in drawing 1 (d). Since insertion to the zygote 4 of the complex 44 concerning this embodiment is performed in the same way as the complex 4 in Embodiment 1, explanation is omitted (refer to drawing 2).

(Embodiment 5) Embodiment 5 differs in Embodiment 1 in that the slit 46 was formed in the film-like substrate 6 of the zygote 2 in Embodiment 1, and the film-like substrate 10 of the complex 4. The development view of zygote 2' and complex 4' concerning Embodiment 5 is shown in drawing 4. As shown in drawing 4, the slit 46 is formed between catalyst electrodes (the air pole 8a, the fuel electrode 8b) so that the film-like substrates 6 and 10 may be penetrated between the electrolyte layers 12, respectively.

[0060]By constituting in this way, bending of a zygote and a complex can be performed still more easily.

(Embodiment 6) Embodiment 6 differs in Embodiment 1 in that the perforations 50 were formed in the film-like substrate 6 of the zygote 2 in Embodiment 1, and the film-like substrate 10 of the complex 4. The development view of the zygote 60 concerning Embodiment 6 and the complex 62 is shown in drawing 5. As shown in drawing 5, the perforations 50 are formed between the electrolyte layers 12 between catalyst electrodes (the air pole 8a, the fuel electrode 8b).

(Embodiment 7) Embodiment 7 differs in Embodiment 1 in that the stoma 52 was formed in the film-like substrate 6 of the zygote 2 in Embodiment 1, and the film-like substrate 10 of the complex 4.

The development view of the zygote 64 concerning Embodiment 7 and the complex 66 is shown in drawing 6. As shown in drawing 6, the stoma 52 is formed between the electrolyte layers 12 between catalyst electrodes (the air pole 8a, the fuel electrode 8b).

(Embodiment 8) It differs in Embodiment 1 in that Embodiment 8 became depressed in the film-like substrate 6 of the zygote 2 in Embodiment 1, and the film-like substrate 10 of the complex 4, and 54 was provided. The side view (a) of the zygote 68 concerning Embodiment 8, the elements on larger scale (b) of said zygote, and a plan (development view) of the zygote 68 and the complex 62 (c) are shown in drawing 7. As shown in drawing 5, the hollow 54 is formed between the electrolyte layers 12 between catalyst electrodes (the air pole 8a, the fuel electrode 8b), and as shown in drawing 7 (b), it is formed by making thin selectively thickness of the film-like substrates 72 and 74.

(Embodiment 9) Embodiment 9 differs in the point which chose PTFE (polytetrafluoroethylene) of the solid polymer as the film-like substrate 6 of the zygote 2 in Embodiment 1 in Embodiment 1. The development view of the complex 48 concerning Embodiment 7 is shown in drawing 8. Thereby, it is not necessary to manufacture the complex 4 to a different body, and since what is necessary is to diffusion-zone(the fuel-diffusion zone 16 and the air diffusion layer 18)-accept it, and just to insert, slimming down can be attained. It is also possible to provide the slot 14 as shown in drawing 1 and drawing 4 thru/or drawing 7, and slit 46 grade.

(Embodiment 10) Embodiment 10 differs in the point which formed the alignment mark 56 for positioning in the film-like substrate 6 of the zygote 2 in Embodiment 1 in Embodiment 1. The development view of the zygote concerning Embodiment 10 and a complex is shown in drawing 9 (a) and (b).

[0061]As shown in drawing 9 (a), the alignment mark 56 concerned is formed in all of four corners of the one catalyst electrode 8 or the one film-like substrate 80 corresponding to the electrolyte layer 12 so that the catalyst electrode 8 and the electrolyte layer 12 may be surrounded. As shown in drawing 9 (b), crest folding and when trough folding is carried out, the alignment mark 56 can also be formed in at least one place of the film-like substrate 81 to which the catalyst electrode (8a or 8b) which will face mutually is joined. As for the alignment mark concerned, the pattern of the cross joint is printed in this example.

(Embodiment 11) Embodiment 11 differs in the point which formed the breakthrough 58 for positioning in the film-like substrate 6 of the zygote 2 in Embodiment 1 in Embodiment 1. The development view of the zygote concerning Embodiment 11 and a complex is shown in drawing 9 (c) and (d).

[0062]As shown in drawing 9 (c), the breakthrough 58 concerned is formed in all of four corners of the one catalyst electrode 8 or the one film-like substrate 80 corresponding to the electrolyte layer 12 so that the catalyst electrode 8 and the electrolyte layer 12 may be surrounded. As shown in drawing 9 (d), the breakthrough which can penetrate the pin etc. which are not illustrated when trough folding is carried out, crest folding and is provided. Although not illustrated, the breakthrough corresponding to the above-mentioned breakthrough is provided also in an air diffusion layer and a fuel diffusion zone.

[0063]When the zygote concerned is inserted in and a laminated structure is formed by this, it can position by inserting a pin etc. in the breakthrough concerned.

[0064]In an above-mentioned fuel cell, although the case where air (oxygen) was led to an air pole when air (oxygen) diffuses the inside of an air diffusion layer automatically was explained, it is not limited to this but the feeding means for supplying air (oxygen) may be established.

[0065]In \*\*\*, although the case of DMFC whose fuel of a fuel cell is methanol solution was explained, it may not be limited to this but fuel may be hydrogen.

[0066]In addition, it cannot be overemphasized that this invention is not limited to each above-

mentioned embodiment.

[0067]

[Effect of the Invention]According to this invention, the fuel cell which reconciled high power and a miniaturization can be provided. By this, the small power supply for portable devices in which prolonged continuous use is possible can be provided.

[0068]Since repetition use will be possible and waste will not be produced [ rechargeable batteries, such as a lithium cell, or ] like [ temporarily ] a cell if not throwing away but fuel is filled up, the energy source in which environment-friendly recycling is possible can be acquired.

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and INPIIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1]It is a development view of a film / electrode conjugate, and a film/electrolyte complex used for the fuel cell concerning this invention.

[Drawing 2]It is an exploded perspective view of the fuel cell 1 using the zygote concerning Embodiment 1.

[Drawing 3]It is an exploded perspective view of the fuel cell 1 using the zygote concerning Embodiment 2.

[Drawing 4]It is a development view of a zygote and a complex concerning Embodiment 5.

[Drawing 5]It is a development view of a zygote and a complex concerning Embodiment 6.

[Drawing 6]It is a development view of a zygote and a complex concerning Embodiment 7.

[Drawing 7]It is a development view of a zygote and a complex concerning Embodiment 8.

[Drawing 8]It is a development view of the complex concerning Embodiment 9.

[Drawing 9]It is a development view of a zygote and a complex concerning Embodiments 10 and 11.

[Drawing 10]It is a figure showing typically the lineblock diagram of the fuel cell system concerning Embodiment 1.

[Description of Notations]

- 1 [ --- A film-like substrate 8 / --- Catalyzer electrode, ] --- A fuel cell, 2 --- A zygote, 4 --- A complex, 6, 10 8a [ --- A slot, 16 / --- A fuel diffusion zone, 16a / --- A fuel supply port, 18 / --- An air diffusion layer, 18a / --- An air supply port, 21 / --- A methanol tank, 22 / --- A mixing tank, 23 / --- A pump, 24a / --- A supply tube, 24b / --- Discharge tube ] --- An air pole, 8b --- A fuel electrode, 12 --- An electrolyte layer, 14

[Translation done.]

**FUEL CELL AND ITS MANUFACTURING METHOD**

**Publication number:** JP2003346867 (A)

**Publication date:** 2003-12-05

**Inventor(s):** FUJIMORI YUJI; KASAHARA YUKIO; MIYAMOTO TSUTOMU

**Applicant(s):** SEIKO EPSON CORP

**Classification:**

- international: *H01M8/24; H01M8/02; H01M8/10; H01M8/10; H01M8/24; H01M8/02; H01M8/10; H01M8/10; (IPC1-7): H01M8/10; H01M8/24; H01M8/02*

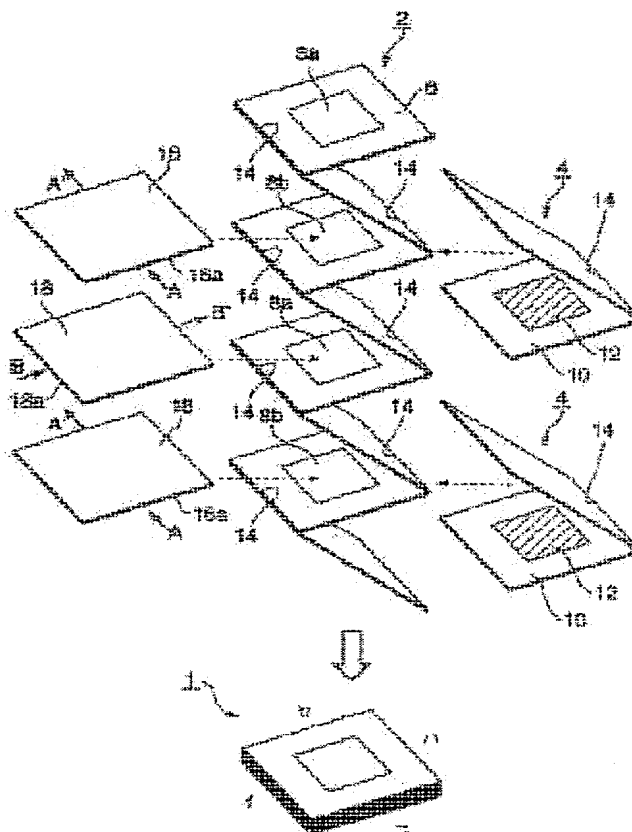
- European:

**Application number:** JP20020153070 20020527

**Priority number(s):** JP20020153070 20020527

**Abstract of JP 2003346867 (A)**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a fuel cell attaining miniaturization, thinning, and large output at the same time, and to provide its manufacturing method. ; **SOLUTION:** This fuel cell is provided with a membrane/electrode joined body formed by joining a catalyst electrode 8 on one surface of a membrane base material 6, a membrane/electrolyte complex 4 formed with an electrolyte layer 12 on one surface of a membrane base material 10 different from the membrane base material 2, and diffusion layers 16 and 18 for supplying gas or liquid to the catalyst electrode 8. This fuel cell is formed by interposing the membrane/electrolyte complex 4 and the diffusion layers 16 and 18 between a laminated structure formed by repeatedly folding down and up prescribed parts of the membrane/electrode joined body 2. ; **COPYRIGHT:** (C)2004,JPO



Data supplied from the esp@cenet database — Worldwide



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2003-346867  
(P2003-346867A)

(43) 公開日 平成15年12月5日 (2003.12.5)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード <sup>*</sup> (参考)
H 0 1 M	8/24	H 0 1 M 8/24	E 5 H 0 2 6
	8/02	8/02	R
			E
			P
			R
審査請求 未請求 請求項の数19 O L (全 12 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2002-153070 (P2002-153070)

(22) 出願日 平成14年5月27日 (2002.5.27)

(71) 出願人 000002369

セイコーエプソン株式会社  
東京都新宿区西新宿2丁目4番1号

(72) 発明者 藤森 裕司

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内

(72) 発明者 笠原 幸雄

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内

(74) 代理人 100079108

弁理士 稲葉 良幸 (外2名)

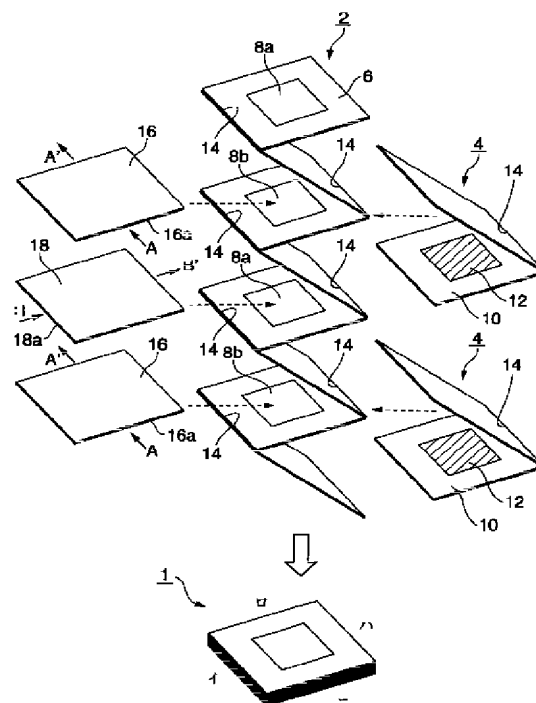
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池及びその製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 小型化・薄型化と大出力とを両立させた燃料電池及びその製造方法を提供する。

【解決手段】 膜状基材6の一方の面に触媒電極8が接合された膜／電極接合体と、前記膜状基材2とは異なる膜状基材10の一方の面に電解質層12が形成された膜／電解質複合体4と、ガスまたは液体を前記触媒電極8に供給するための拡散層16、18を有し、前記膜／電極接合体2の所定箇所を、山折り、谷折りを繰り返して形成した積層構造体に、前記膜／電解質複合体4および前記拡散層16、18を介在させて形成した燃料電池により解決する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 膜状基材の一方の面に触媒電極が接合された膜／電極接合体と、前記膜状基材とは異なる膜状基材の一方の面に電解質層が形成された膜／電解質複合体と、ガスまたは液体を前記触媒電極に供給するための拡散層を有し、前記膜／電極接合体の所定箇所を、山折り、谷折りを繰り返して形成した積層構造体に、前記膜／電解質複合体および前記拡散層を介在させて形成したことを特徴とする燃料電池。

【請求項2】 前記膜／電極接合体表面上に、燃料極2つと空気極2つが交互に形成されていることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池。

【請求項3】 更に、前記膜／電極接合体表面上の両端部に空気極が形成されていることを特徴とする請求項1又は2に記載の燃料電池。

【請求項4】 前記膜／電極接合体表面上に、空気極および燃料極が、空気極・燃料極・燃料極・空気極を1構成単位として、少なくとも1構成単位以上形成されていることを特徴とする請求項1から3のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項5】 前記膜／電極接合体表面上の両端部に燃料極が形成されていることを特徴とする請求項1又は2に記載の燃料電池。

【請求項6】 前記膜／電極接合体表面上に、空気極および燃料極が、燃料極・空気極・空気極・燃料極を1構成単位として、少なくとも1構成単位以上形成されていることを特徴とする請求項1から3のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項7】 前記膜／電極接合体表面上に、前記触媒電極に代えて、導電性を有する拡散層が形成されていることを特徴とする請求項1から6に記載の燃料電池。

【請求項8】 前記膜／電解質複合体が、前記膜／電極接合体と一体に形成されていることを特徴とする請求項1から7のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項9】 前記膜／電解質複合体が、前記膜／電極接合体とは別体に形成されていることを特徴とする請求項1から7のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項10】 前記膜／電極接合体は、当該膜／電極接合体表面上に接合された各触媒電極の間に折り曲げ部位が形成されていることを特徴とする請求項1から9のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項11】 前記折り曲げ部位は、溝、スリット、貫通孔、ミシン目、窪みのいずれかであることを特徴とする請求項10に記載の燃料電池。

【請求項12】 前記膜状基材が、ポリアミド、ポリエチレン、ポリエステル、ポリプロピレンから選択されたものであることを特徴とする請求項1から11のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項13】 前記電解質は、プロトン輸送材料が含

浸されたPTFE（ポリテトラフルオロエチレン）からなることを特徴とする請求項1から12のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項14】 前記拡散層は、当該拡散層の供給口が、前記燃料極と前記空気極において異なる向きに介在することを特徴とする請求項1から13のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項15】 前記拡散層は、当該拡散層に形成されている供給口が前記燃料極と前記空気極において直角方向に介在することを特徴とする請求項14に記載の燃料電池。

【請求項16】 前記膜／電極接合体に、位置決め用のマークまたは貫通孔が形成されていることを特徴とする請求項1から16のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項17】 膜状基材の一方の面に触媒電極を接合して、膜／電極接合体を製造する工程と、前記膜状基材とは異なる膜状基材の一方の面に電解質層を形成して、膜／電解質複合体を製造する工程と、前記膜／電極接合体に折り曲げ部位を形成する工程と、当該固体電解質膜／電極接合体を山折り、谷折りする工程と、前記触媒電極が形成されていない前記膜／電極接合体に前記膜／電解質複合体を介在させる工程と、前記触媒電極が形成されている前記膜／電極接合体に拡散層を介在させる工程と、を含む燃料電池の製造方法。

【請求項18】 前記折り曲げ部位を形成する工程において、当該折り曲げ部位は、溝、スリット、貫通孔、ミシン目、窪みのいずれかを形成することを特徴とする請求項17に記載の燃料電池。

【請求項19】 前記拡散層を介在させる工程において、当該拡散層に形成されている供給口が、前記燃料極と前記空気極において異なる向きに介在させることを特徴とする請求項17に記載の燃料電池の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は燃料電池及びその製造方法に関し、特に、小型化と大出力とを両立させた燃料電池等に関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池は、燃料極（アノード極）、電解質、及び空気極（カソード極）が積層されて構成され、燃料極に水素を供給し空気極に酸素を供給して、化学反応（アノード： $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$ 、カソード： $1/2\text{O}_2 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}$ ）の自由エネルギー変化を直接に電気エネルギーとして取り出すものである。燃料電池は、化石燃料を使用しないクリーンエネルギーであるため、二酸化炭素排出量削減に貢献する環境調和型電源として注目されている。

【0003】中でも、電解質に固体高分子膜を用いる固

体高分子型燃料電池（PEFC）は、低温での出力が大きい、小型の家庭用電源、ポータブル電源、移動体用電源としての実用化が検討されている。また、メタノール燃料を電池内部で直接改質する形のPEFCである直接メタノール型燃料電池（DMFC）も、実用化が検討されている。

【0004】これまで、携帯電話等の携帯機器の電源としては、リチウムイオン電池等の二次電池が主流であったが、最近ではPEFCやDMFCを携帯機器の電源として用いるための開発がなされている。PEFCやDMFCは、充電が不要であり、燃料を連続供給すれば連続使用が可能であるので、実用化されれば携帯機器の電源の連続使用時間が著しく長くなることが期待されている。

【0005】また、リチウムイオン電池等の二次電池に比べて廃棄物を生じることがなく、燃料の補充だけで繰り返し利用することが可能である。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】このようにPEFCを携帯機器の電源として適用しようとする場合、PEFCを小型化・薄型化する必要がある。

【0007】しかしながら、単に、従来の大型PEFCの各構成部品のサイズをそれぞれ小さくして小型化しても、電池の出力はセルの合計表面積に比例するので、十分な出力を得ることが難しい。

【0008】一方、出力量を上げるためにセルの積層数（スタック数）を増加させることも考えられるが、スタック数を増加させると、セパレータ等のスタッキングのための部品も多く必要となり、薄型化を実現することが難しい。また、スタック数が増えると、組立て工程数が増え、製造が煩雑となる。

【0009】そこで、本発明は、小型化・薄型化と大出力とを両立させた燃料電池及びその製造方法を提供する。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明は、膜状基材の一方の面に触媒電極が接合された膜／電極接合体と、前記膜状基材とは異なる膜状基材の一方の面に電解質層が形成された膜／電解質複合体と、ガスまたは液体を前記触媒電極に供給するための拡散層を有し、前記膜／電極接合体の所定箇所を、山折り、谷折りを繰り返して形成した積層構造体に、前記膜／電解質複合体および前記拡散層を介在させて形成したことを特徴とする燃料電池を提供するものである。

【0011】このように、膜状の基材を折り重ね、その間に電解質を挟み込むように形成することにより、折り重なった2つの触媒電極の間に拡散層を挿入すれば、2つの触媒電極が1つの拡散層を共有することができる。その結果、部品数を減らすことができ、薄型化を実現することができる。

【0012】本発明の燃料電池の厚さは、基材となる膜の厚さ又は折り返す回数によっても異なるが、約0.5mm～20mmの超薄型とすることができる。また、大きさは、特に限定されないが、例えば、10円玉サイズ（幅2.3cm×長さ2.3cm×高さ3mm）の超小型とすることができる。このように超小型化した場合、空気極側を開放するだけで、特に酸素の供給機構を設けなくとも、燃料電池の周囲から空気（酸素）が空気極へ供給されるほか、放熱や調湿も不要であるというメリットがある。

【0013】また、前記燃料電池は、前記拡散層として、燃料拡散層と、空気拡散層とを有する。

【0014】燃料拡散層は、燃料極に燃料を供給するためのものであり、空気拡散層は、空気極に酸素を供給するためのものである。また、前記燃料極には、燃料として水素又はメタノール溶液が供給されることが好ましい。一方、前記空気極は大気中の空気に含まれる酸素を利用することができる。

【0015】また、前記膜／電極接合体に形成される燃料極と空気極は、燃料極2つと空気極2つが交互に形成されていることが好ましい。即ち、空気極（カソード）をK、燃料極（アノード）をAとすると、前記膜／電極接合体の一方の面に、AAKKAAKK…のように形成することが好ましい。

【0016】更に、前記膜／電極接合体表面上の両端部に空気極が形成されていることが特に好ましい。即ち、カソード（K）とアノード（A）をK…AAKKAA…Kのような順で形成することが特に好ましい。

【0017】このように構成することにより、前記膜状基材の両端の触媒電極は空気拡散層を挿入することなく、空気極（カソード）として機能させることができる。即ち、自然開放で酸素を供給することができるため、空気拡散層を省略することができ、薄型化を図ることができる。また、両端のカソードKに挟まれた触媒電極（2組のAA及び1組のKK）は、前記膜／電極接合体を折り曲げた際に、折り重なるような状態になるため、2つの触媒電極（AA又はKK）の間に拡散層を挿入すれば、2つの触媒電極が1つの拡散層を共有することができるようになり、更に部品数を減らすことができる結果、薄型化を実現することができる。

【0018】この他、前記膜／電極接合体表面上に、空気極および燃料極が、空気極・燃料極・燃料極・空気極を1構成単位として、少なくとも1構成単位以上形成されていることができる。即ち、KAAKとすることもでき、このKAAKを1構成単位として、その構成単位を1（KAAK）または2（KAAKKAAK）若しくは3以上（KAAKKAAKKAAK…）にすることもできる。

【0019】また、上記空気極と燃料極の順序を逆にして、前記膜／電極接合体表面上の両端部に燃料極を形成

することもできる。即ち、カソード(K)とアノード(A)をA…KKAKK…Aのような順で形成することもできる。

【0020】この他、前記膜／電極接合体表面上に、空気極および燃料極を、燃料極・空気極・空気極・燃料極の順で形成することもできる。即ち、AKKAとすることもでき、このAKKAを1構成単位として、その構成単位を1(AKKA)または2(AKKA AKKA)若しくは3以上(AKKA AKKA AKKA…)にすることもできる。

【0021】また、前記膜／電極接合体は、燃料極(アノードA)と、空気極(カソードK)を1個ずつ交互に形成することもできる。即ち、前記膜／電極接合体の一方の面に、KAKAKAKAの順に形成することもできる。

【0022】上記のいずれの構成においても、触媒電極は、膜状基材の一方の面に帯状に連続して接合することもできるが、クロスリーク(クロスオーバー)を防止する観点から、膜状基材に所定の間隔を空け断続的に形成するのが好ましい。

【0023】また、前記膜／電極接合体表面上に、前記触媒電極に代えて、導電性を有する拡散層を形成することもできる。

【0024】このように構成することにより、拡散層を別体に構成する必要がなくなり、更に薄型化を図ることができる。更に、拡散層に導電性を有する材質(例えば、カーボン、カーボンファイバー、カーボンナノチューブ、白金、白金-ルテニウム合金などの触媒等)を選択すれば、当該拡散層が触媒電極としての機能を発揮することができるため、膜状基材に接合する触媒電極を省略することもできる。

【0025】また、前記拡散層としては、ガス又は液体が通過できるものであれば特に制限はなく、メッシュ構造を有する板状体、スリットが入った板状体、エッチングにより溝を形成した板状体、繊維状体等を用いることができる。

【0026】また、前記膜／電解質複合体は、前記膜／電極接合体と一体に形成することも、別体に形成することもできる。

【0027】前記膜／電極接合体は、これに接合された各触媒電極の間に折り曲げ部位が形成されていることが好ましい。

【0028】ここでいう折り曲げ部位とは、前記膜／電極接合体を山折りまたは谷折りする際に、その折り曲げ位置を定めるものとなる部位をいう。当該折り曲げ部位は種々考えられるが、例えば、スリット、貫通孔、ミシン目、前記膜／接合体の厚さをあらかじめ薄くした溝や窪み等であることが好ましい。

【0029】また、当該膜／電極接合体を正確に折り込んでいくために、位置決め用のアライメントマークを、

前記膜／電極接合体の表裏または少なくとも一方の面に形成していることが好ましい。当該マークの位置は、仮に、1枚の膜状基材上に触媒電極1つが接合されているとすると、当該膜状基材の4隅の全部または少なくとも1ヶ所に形成されていることが好ましい。このアライメントマークは、例えば、十字、×印、○印等のパターンを印刷することによって形成することができる。

【0030】また、膜／電極接合体を折り込んで積層構造を形成した際にピン等を貫通させることができるような貫通孔を設け、このピン等を当該貫通孔に挿通することによって位置決めすることもできる。かかる場合、当該膜／電極接合体に挿入される前記膜／電解質複合体および前記拡散層にも、上記貫通孔を設けておくことはいうまでもない。

【0031】上記のように構成することにより、前記膜／電極接合体を折り曲げる際の作業が容易となり、折り曲げの位置決めも正確に行うことができる。更に、折り曲げた後の形状を安定にすることができる。

【0032】また、前記膜状基材は、ポリアミド、ポリエチレン、ポリエステル、ポリプロピレン等の電気的絶縁性を有する素材から選択することができる。これらの膜状基材は、透過性を付与するための細孔を設けたり、メッシュ状、ポーラス状とすることが好ましい。また、基材の全体に透過性を付与することもできるが、触媒電極及び電解質層が形成されている部分にのみ透過性を持たせることが、膜状基材にセパレーターとしての機能を付与する観点からより好ましい。

【0033】これにより、膜状基材がセパレーターとしての役割も果たすことができ、部品点数を減らす結果、より一層薄型化を図ることができる。

【0034】なお、前記膜状基材は、電解質であることもできる。当該電解質としては、膜状の形態をとることができるものが好ましく、例えば、固体高分子膜であることが好ましい。固体高分子膜としては、フッ素イオン系イオン交換膜、部分フッ素化系イオン交換膜、炭化水素系イオン交換膜、有機無機ハイブリッドイオン交換膜、電解質含浸イオン交換膜、混合イオン交換膜等を挙げることができる。

【0035】特に、前記固体高分子膜は、プロトン輸送材料が含浸されたPTFE(ポリテトラフルオロエチレン)からなることが好ましい。このような固体高分子膜は適度な強度、伸度、弾性、硬さ、こわさを有しているので、本発明の燃料電池を構成する上で好適である。プロトン輸送材料としては、例えば、パーフルオロスルホン酸系高分子が好ましい。固体高分子膜としては、例えば、フレオミン膜(旭硝子社商標名)、ナフィオン膜(デュボン社商標名)等が好適に用いられる。

【0036】前記触媒電極としては、白金を用いることができる。また、燃料極(アノード)として機能する電極には、一酸化炭素(CO)による被毒を防止する観点から

ら、白金にルテニウムを担持した白金-ルテニウム合金を用いることが好ましい。

【0037】また、前記拡散層は、当該拡散層の供給口が、前記燃料極と前記空気極において異なる向きに介在することが好ましい。特に、当該拡散層の供給口が前記燃料極と前記空気極において直角方向に介在することがより好ましい。

【0038】このように構成することにより、構造を簡易化することができ、かつ、薄型でも確実に燃料（水素）又は空気（酸素）を供給することができる。即ち、本発明の燃料電池が折り畳まれて積層構造を構成した際に、新たに4つの側面が形成されることになるが、本発明の燃料電池は薄型であるために、同一面（同一方向）に供給口を設けると構造が複雑になる。そこで、図2の下に示す燃料電池1に示すように、新たに形成された4つの側面をそれぞれイ、ロ、ハ、ニとすると、燃料供給口をイの面に設けた場合、空気供給口はイ以外の面、即ち、ロ、ハ、ニのいずれかに設けることが好ましい。特に、ロ又はニに設けることが好ましい。

【0039】本発明は、膜状基材の一方の面に触媒電極を接合して、膜／電極接合体を製造する工程と、前記膜状基材とは異なる膜状基材の一方の面に電解質層を形成して、膜／電解質複合体を製造する工程と、前記膜／電極接合体に折り曲げ部位を形成する工程と、当該固体電解質膜／電極接合体を山折り、谷折りする工程と、前記触媒電極が形成されていない前記膜／電極接合体に前記膜／電解質複合体を介在させる工程と、前記触媒電極が形成されている前記膜／電極接合体に拡散層を介在させる工程とを含む燃料電池の製造方法を提供するものである。

【0040】このような製造方法とすることにより、小型化と大出力とを両立させた燃料電池を簡易に製造することができる。また、膜／電極接合体を折り曲げる工程において、折り曲げる箇所（膜／電極接合体における折り曲げ位置）、折り曲げる回数、折り曲げ加工の方法等を調整することによって、製造する小型燃料電池のサイズや出力を調整できるので、容易に多様なサイズや出力の燃料電池を製造することができる。更に、一方の面だけに触媒電極を形成するので、容易に製造することができる。

【0041】前記膜／電極接合体の作製工程においては、触媒電極は帯状に連続して形成することもできるが、膜状基材上の孔が形成された部位（折り曲げ部位）には形成せず、固体電解質膜上に断続的に形成されることがクロスリーク（クロスオーバー）を防止する観点及び製造コストを考慮する上で好ましい。また、膜状基材への触媒電極の接合は、あらかじめ成膜した触媒電極を膜状基材上に印刷するか、押圧することにより接合してもよく、あるいは、膜状基材上に直接スパッタリング法により形成してもよい。

【0042】前記膜状基材とは異なる膜状基材の一方の面に電解質層を形成して、膜／電解質複合体を製造する工程においては、前記膜状基材と異なる基材を選択することもできるが、同じ基材を選択する方が製造コストを考慮する上で好ましい。また、膜状基材への電解質層の形成は、あらかじめ所定の大きさに成型したPTFE（ポリテトラフルオロエチレン）等の電解質層を膜状基材にマスクを用いて印刷等

することにより形成することができる。更に、膜状基材に触媒電極を接合する代わりに、膜／電解質複合体の両面に触媒電極を接合すれば、前記工程において触媒電極を接合する作業を省略することもできる。

【0043】前記折り曲げ部位を形成する工程においては、当該折り曲げ部位は前記触媒電極と触媒電極との間に設けることが好ましく、膜／電極接合体における折り曲げ部位にあらかじめスリット、ミシン目、貫通孔等を形成したり、折り曲げ箇所において膜／電極接合体の厚さをあらかじめ薄くしておくような溝や窪み等を形成してもよい。また、前記折り曲げる工程の前であれば、膜／電極接合体の作製工程の前に行ってもよい。

【0044】このようにすれば、折り曲げる作業が容易となり、また、折り曲げる位置決めも正確となる。また、このようにすれば、折り曲げた後の形状をより安定して維持することができる。

【0045】前記山折り・谷折り工程においては、膜／電極接合体に設けた孔を目印に山折り、谷折りを繰り返しつつ、ジグザグに折り込んでいく。このとき、当該膜／電極接合体を正確に折り込んでいくために、位置決め用のアライメントマークを、前記膜／電極接合体の表裏または少なくとも一方の面に形成していることが好ましい。当該マークの位置は、仮に、1枚の膜状基材上に触媒電極1つが接合されているとすると、当該膜状基材の4隅の全部または少なくとも1ヶ所に形成されていることが好ましい。このアライメントマークは、例えば、十字、×印、○印等のパターンを印刷することによって形成することができる。

【0046】また、膜／電極接合体を折り込んで積層構造を形成した際にピン等を貫通させることができるような貫通孔を設け、このピン等を当該貫通孔に挿通することによって位置決めすることもできる。かかる場合、当該膜／電極接合体に挿入される前記膜／電解質複合体および後述する拡散層にも、上記貫通孔を設けておくことはいうまでもない。

【0047】前記拡散層を介在させる工程は、拡散層を、折り曲げられた前記膜／電極接合体と一体に成形する工程であっても、別体に形成する工程であってもよい。ここで、当該拡散層に形成されている供給口は、前記燃料極と前記空気極において異なる向きに介在させるのが燃料（水素）および空気（酸素）を確実に供給する観点からより好ましい。

【0048】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を、図面を参照しつつ説明する。

【0049】（実施形態1）図1は、本発明に係る燃料電池に用いられる膜／電極接合体及び膜／電解質複合体の展開図である。図1（a）に、実施形態1に係る膜／電極接合体（以下、「接合体」と称する）2と膜／電解質複合体（以下、「複合体」と称する）4を示す。

【0050】図1（a）に示すように、接合体2は、膜状基材6と、当該膜状基材6の一方の面上に接合された触媒電極8とから構成される。前記接合体2の膜状基材6と前記複合体4の膜状基材10は共にナイロンからなり、それぞれ別体に形成されている。なお、図示しないが、当該膜状基材10の触媒電極および電解質層が形成されている部分には、透過性を付与するための細孔が設けられている。

【0051】触媒電極8は、膜状基材6上に、それぞれ所定の間隔をもって合計8個接合されている。この触媒電極8は、白金（Pt）を担持した空気極8aと、白金（Pt）及びルテニウム（Ru）を担持した燃料極8bからなり、空気極8a（カソードK）と燃料極8b（アノードA）が、図1における左から右にかけてK A A K K A A Kの順に形成されている。

【0052】一方、複合体4は、膜状基材10と、当該膜状基材10一方の面上に形成された電解質層12とからなる。当該複合体4の膜状基材10は前記接合体2の膜状基材6より短く形成され、かつ、前記接合体2とは別に2個の複合体4が形成されている。電解質層12は、膜状基材10上に、それぞれ所定の間隔をもって2個ずつ形成されている。この電解質層12はプロトン輸送材料が含浸されたPTFE（ポリテトラフルオロエチレン）からなる。なお、膜状基材6、10には所定間隔で溝14が形成されている。

【0053】前記接合体2は、図2に示すように、溝14によって位置決めされて、山折り、谷折りを繰り返して、ジグザグ状に折り曲げられる。また、折り曲げられたことによって相互に向き合う触媒電極8のうち、燃料極8b相互の間には燃料拡散層16が挿入され、空気極8a相互の間には空気拡散層18が挿入される。

【0054】前記燃料拡散層16には、燃料を供給する燃料供給口16aを有し、当該燃料供給口16aからA→A'方向で燃料が供給される。また、前記空気拡散層18には、空気を供給する空気供給口18aを有し、当該空気供給口18aからB→B'方向で空気（酸素）が供給される。この燃料拡散層16及び空気拡散層18はメッシュの金属フォーム、例えば、スチールウールからなる多孔性膜からなる。なお、燃料拡散層16と空気拡散層18は、図2に示すように、供給口が異なる方向に配置される。一方、複合体4は、電解質層12が内側になるように、溝14によって決められた位置で折り曲げ

られる。そして、触媒電極8（8a、8b）が接合されている面とは反対の面（図2における右側）から、電解質層12が接合体2に接触するように挿入される。その際、複合体4は、図2中、接合体2の最上部と最下部の折り曲げ位置に、複合体4の折り曲げ位置が当接するように挿入されて、燃料電池1が形成される。

【0055】なお、図2において最上段に位置する空気極8aと最下段に位置する空気極8a（図示せず）には前記空気拡散層18を挿入する必要はなく、自然開放によって空気極8aに空気（酸素）を供給することができる。更に、燃料拡散層16及び空気拡散層18には、それぞれ図示しない集電部材が設けられている。

【0056】次に、図2及び図10を参照しながら、実施形態1の燃料電池1の動作について説明する。

【0057】図10に示すように、メタノールタンク21に燃料であるメタノール溶液（例えば、メタノールの3%水溶液）を充填し、ポンプ23を作動させると、メタノール溶液がミキシングタンク22、供給チューブ24a、図2に示した燃料供給口16aを通じて燃料拡散層16へ導かれる。この際、燃料拡散層16の内部が正圧となるようにポンプ23を作動させる。燃料供給口16aへ導かれたメタノール溶液は、燃料拡散層16を拡散して水素に変換（改質）されながら燃料極8bへ導かれる。一方、空気拡散層18は、空気（酸素）が図10のB→B'方向（又はその逆方向）及びC、D方向に導かれていき、空気拡散層18内を拡散して、空気極8aへ導かれる。これによって得られる燃料電池1からの出力を、前記集電部材（図示せず）を通じて取り出す。前記燃料排出口（図示せず）からは、未使用のメタノール溶液や副生物が排出チューブ24bを通じてミキシングタンク22に還流される。なお、メタノールタンク21は適宜交換可能な燃料カートリッジであってもよい。

【0058】上記のように構成することにより、セルの表面積を大きく取ることができるので、小型でありながら大出力を得ることができる。また、最上部と最下部は開放極として空気拡散層が不要であり、かつ、2つの触媒電極が1つの拡散層を共有することができるようになるため、部品数を減らすことができる結果、薄型化を実現することができる。

（実施形態2）実施形態2は、複合体32を接合体30と一体形成した点が実施形態1とは異なっている。図1（b）に、実施形態2に係る接合体30の展開図を示す。本実施形態では、接合体30の図面左から第2番目及び第6番目に位置する触媒電極の上部と、図面左から第3番目及び第7番目に位置する触媒電極の下部に複合体32が一体的に形成されている。

【0059】図3に、本実施形態に係る接合体30を用いた燃料電池1の分解斜視図を示す。本実施形態に係る接合体30は、図3に示すように、電解質層12が形成された複合体32a、32bが、触媒電極（空気極8

a、燃料極8b)が接合された面とは反対の面に折り込まれる。図3においては、32aの複合体は図面手前から奥にかけて折り込まれ、32bの複合体は図面奥から手前にかけて折り込まれる。同時に、実施形態1と同じ要領で燃料拡散層16と空気拡散層18が接合体30に挿入されて、燃料電池1が形成される。

(実施形態3) 実施形態3は、実施形態2における複合体32を接合体に一体形成させる位置が実施形態2とは異なっている。図1(c)に、実施形態3に係る接合体40の展開図を示す。本実施形態では、接合体40の図面左から第2番目及び第6番目に位置する触媒電極の上部と、図面左から第4番目及び第8番目に位置する触媒電極の下部に複合体42が一体的に形成されている。なお、接合体40及び複合体42の折り込み方法は前記実施形態2と同様であるので、説明を省略する(図3参照)。

(実施形態4) 実施形態4は、実施形態1における複合体4を、電解質層12ごとに各々形成した点が実施形態1とは異なる。図1(d)に、実施形態4に係る接合体2及び複合体44の展開図を示す。本実施形態に係る複合体44の接合体4への挿入は、実施形態1における複合体4と同じ要領で行われるため、説明を省略する(図2参照)。

(実施形態5) 実施形態5は、実施形態1における接合体2の膜状基材6及び複合体4の膜状基材10にスリット46を設けた点が実施形態1とは異なる。図4に、実施形態5に係る接合体2'及び複合体4'の展開図を示す。図4に示すように、スリット46は触媒電極(空気極8a、燃料極8b)の間、電解質層12の間にそれぞれ膜状基材6、10を貫通するように形成されている。

【0060】このように構成することにより、接合体及び複合体の折り曲げを更に容易に行うことができる。

(実施形態6) 実施形態6は、実施形態1における接合体2の膜状基材6及び複合体4の膜状基材10にミシン目50を設けた点が実施形態1とは異なる。図5に、実施形態6に係る接合体60及び複合体62の展開図を示す。図5に示すように、ミシン目50は触媒電極(空気極8a、燃料極8b)の間、電解質層12の間に形成されている。

(実施形態7) 実施形態7は、実施形態1における接合体2の膜状基材6及び複合体4の膜状基材10に小孔52を設けた点が実施形態1とは異なる。図6に、実施形態7に係る接合体64及び複合体66の展開図を示す。図6に示すように、小孔52は触媒電極(空気極8a、燃料極8b)の間、電解質層12の間に形成されている。

(実施形態8) 実施形態8は、実施形態1における接合体2の膜状基材6及び複合体4の膜状基材10に窪み54を設けた点が実施形態1とは異なる。図7に、実施形態8に係る接合体68の側面図(a)、前記接合体の部

分拡大図(b)、上面図(接合体68及び複合体62の展開図)(c)を示す。図5に示すように、窪み54は触媒電極(空気極8a、燃料極8b)の間、電解質層12の間に形成されており、図7(b)に示すように、膜状基材72および74の厚さを部分的に薄くすることにより形成されている。

(実施形態9) 実施形態9は、実施形態1における接合体2の膜状基材6に、固体高分子のPTFE(ポリテトラフルオロエチレン)を選択した点が実施形態1とは異なる。図8に、実施形態7に係る複合体48の展開図を示す。これにより、複合体4を別体に製造する必要なく、拡散層(燃料拡散層16及び空気拡散層18)のみ挿入すればよいため、更に薄型化を図ることができる。なお、図1及び図4乃至図7に示すような溝14やスリット46等を設けることも可能である。

(実施形態10) 実施形態10は、実施形態1における接合体2の膜状基材6に、位置決め用のアライメントマーク56を形成した点が実施形態1とは異なる。図9(a)(b)に、実施形態10に係る接合体および複合体の展開図を示す。

【0061】図9(a)に示すように、当該アライメントマーク56は、触媒電極8および電解質層12を囲むように、1つの触媒電極8または電解質層12に対応する1つの膜状基材80の4隅の全部に形成されている。また、図9(b)に示すように、山折り・谷折りされた際に互いに向き合うことになる触媒電極(8a同士または8b同士)が接合されている膜状基材81の少なくとも1ヶ所に、アライメントマーク56を形成することもできる。なお、本実施例においては、当該アライメントマークは十字のパターンが印刷されている。

(実施形態11) 実施形態11は実施形態1における接合体2の膜状基材6に、位置決め用の貫通孔58を形成した点が実施形態1とは異なる。図9(c)(d)に、実施形態11に係る接合体および複合体の展開図を示す。

【0062】図9(c)に示すように、当該貫通孔58は、触媒電極8および電解質層12を囲むように、1つの触媒電極8または電解質層12に対応する1つの膜状基材80の4隅の全部に形成されている。また、図9(d)に示すように、山折り・谷折りされた際に図示しないピン等が貫通することができるような貫通孔が設けられている。なお、図示しないが、空気拡散層および燃料拡散層にも上記貫通孔に対応する貫通孔が設けられる。

【0063】これにより、当該接合体を折り込んで積層構造を形成した際にピン等を当該貫通孔に挿通することによって位置決めすることができる。

【0064】なお、上述の燃料電池においては、空気(酸素)が自然に空気拡散層内を拡散することにより、空気(酸素)が空気極へ導かれる場合について説明した

が、これに限定されず、空気（酸素）を供給するための供給手段を設けてもよい。

【0065】また、上述においては、燃料電池の燃料がメタノール溶液であるDMFCの場合について説明したが、これに限定されず、燃料は水素であってもよい。

【0066】その他、本発明が上記各実施形態に限定されないことは、いうまでもない。

【0067】

【発明の効果】本発明によれば、大出力と小型化を両立させた燃料電池を提供することができる。これによって、長時間連続使用可能な携帯機器用の小型電源を提供することができる。

【0068】また、リチウム電池等の二次電池や一時電池のように、使い捨てではなく、燃料を補充すれば、繰り返し利用が可能で、廃棄物を生じることがないため、環境に優しいリサイクル可能なエネルギー源を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明に係る燃料電池に用いられる膜／電極接合体及び膜／電解質複合体の展開図である。

【図2】 実施形態1に係る接合体を用いた燃料電池1の分解斜視図である。

【図3】 実施形態2に係る接合体を用いた燃料電池1

の分解斜視図である。

【図4】 実施形態5に係る接合体および複合体の展開図である。

【図5】 実施形態6に係る接合体および複合体の展開図である。

【図6】 実施形態7に係る接合体および複合体の展開図である。

【図7】 実施形態8に係る接合体および複合体の展開図である。

【図8】 実施形態9に係る複合体の展開図である。

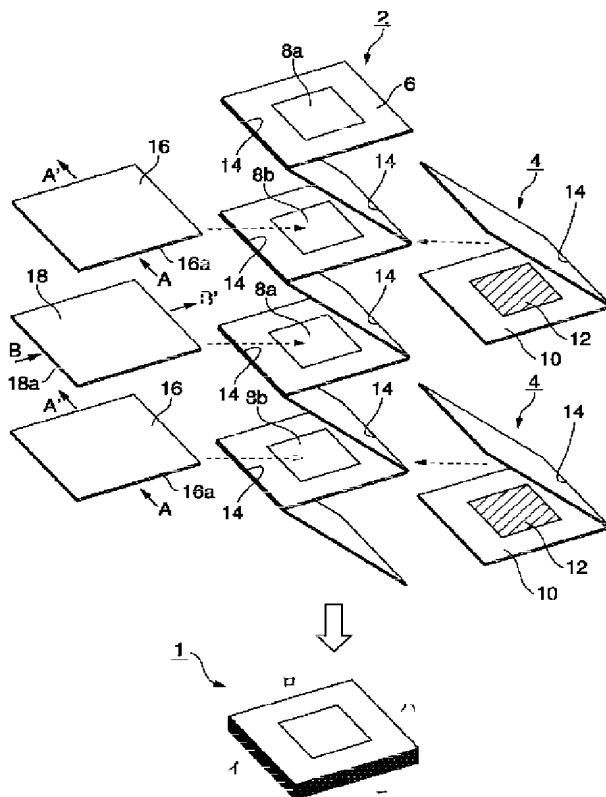
【図9】 実施形態10および11に係る接合体および複合体の展開図である。

【図10】 実施形態1に係る燃料電池システムの構成図を模式的に示した図である。

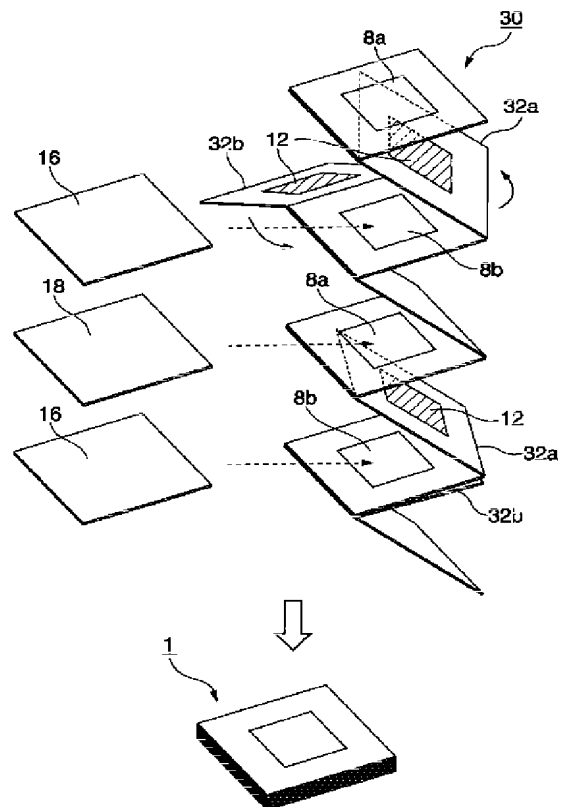
【符号の説明】

1…燃料電池、2…接合体、4…複合体、6、10…膜状基材、8…触媒電極、8a…空気極、8b…燃料極、12…電解質層、14…溝、16…燃料拡散層、16a…燃料供給口、18…空気拡散層、18a…空気供給口、21…メタノールタンク、22…ミキシングタンク、23…ポンプ、24a…供給チューブ、24b…排出チューブ

【図2】

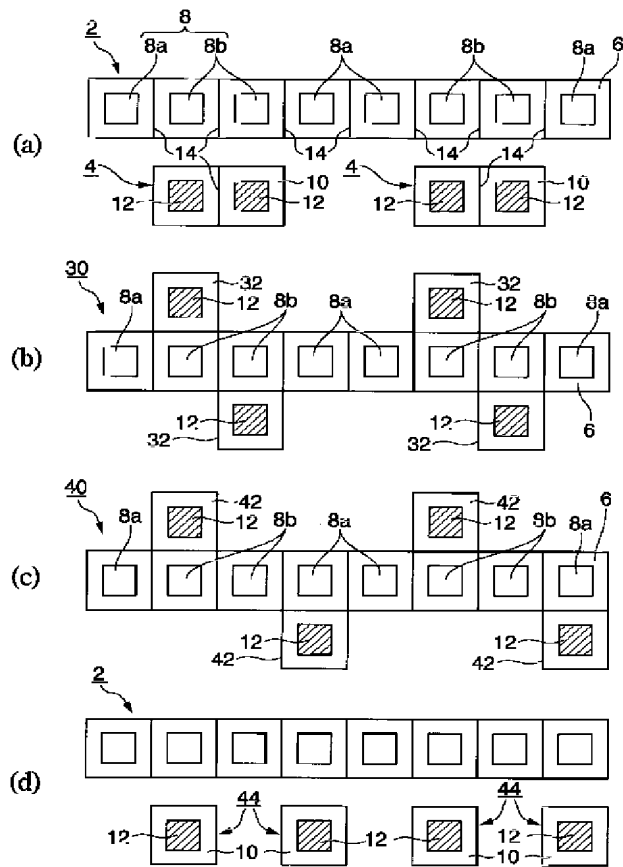


【図3】

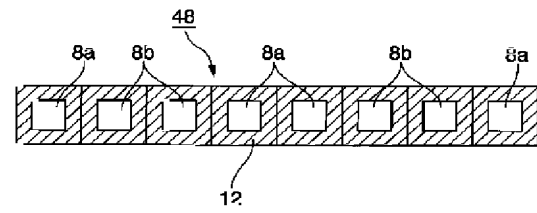




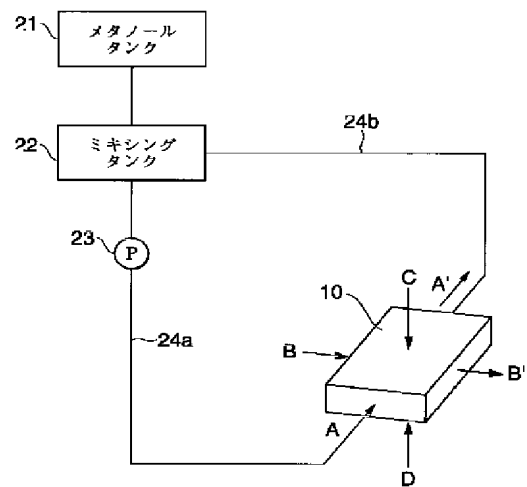
【図1】



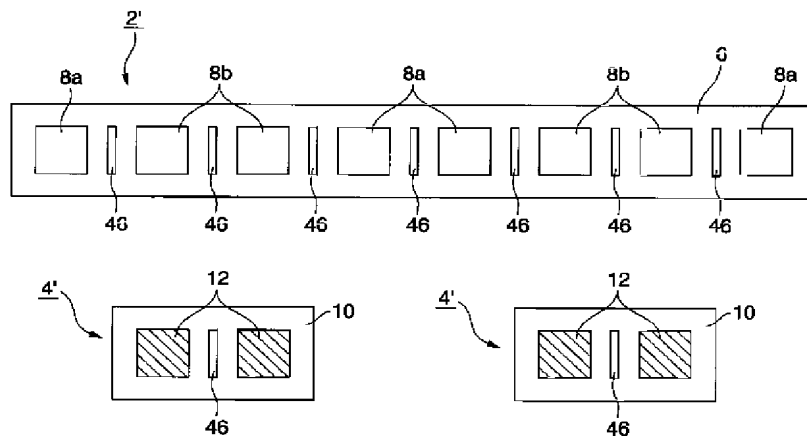
【図8】



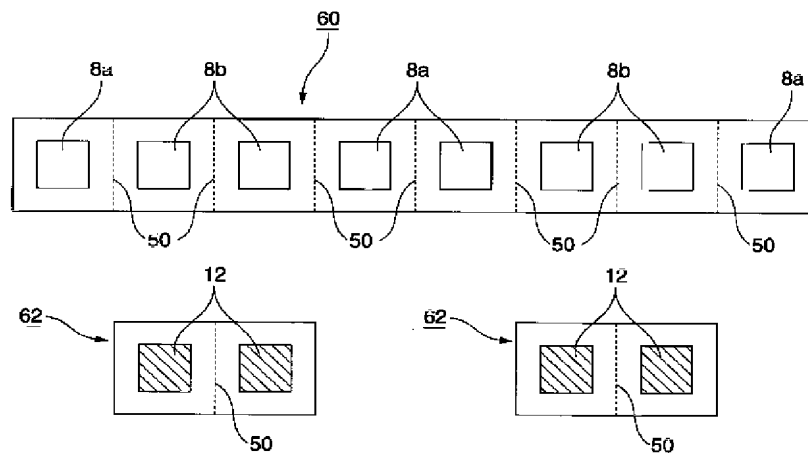
【図10】



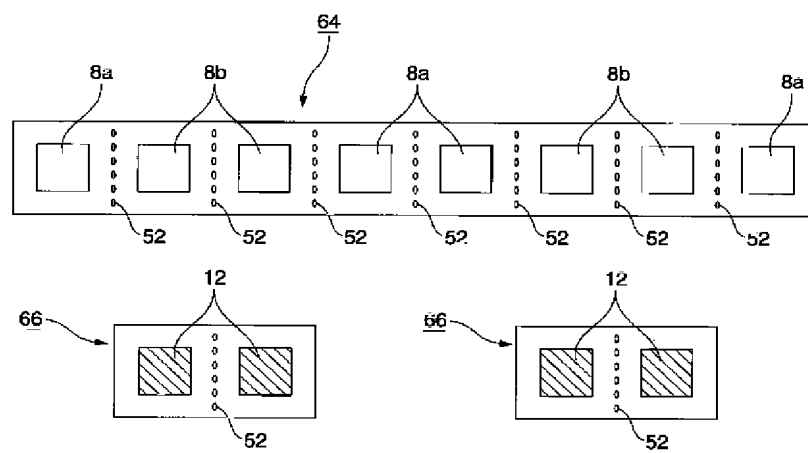
【図4】



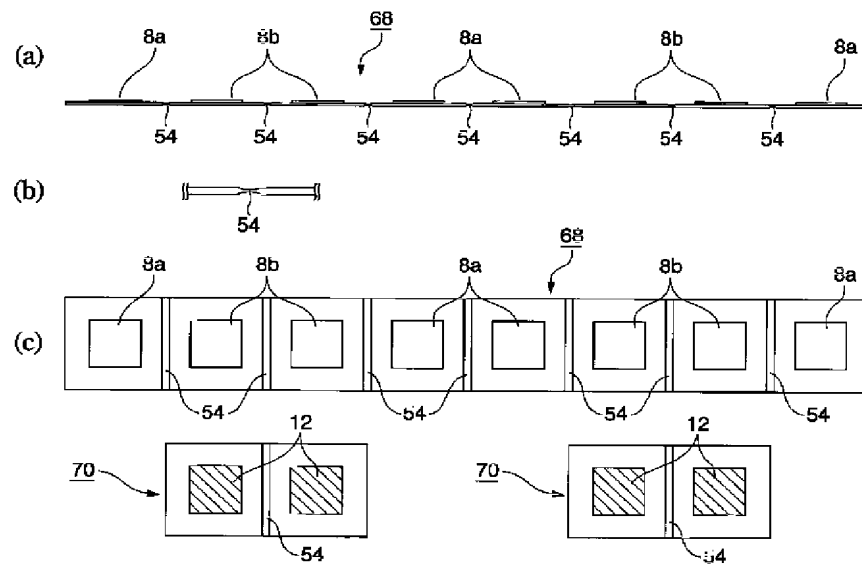
【図5】



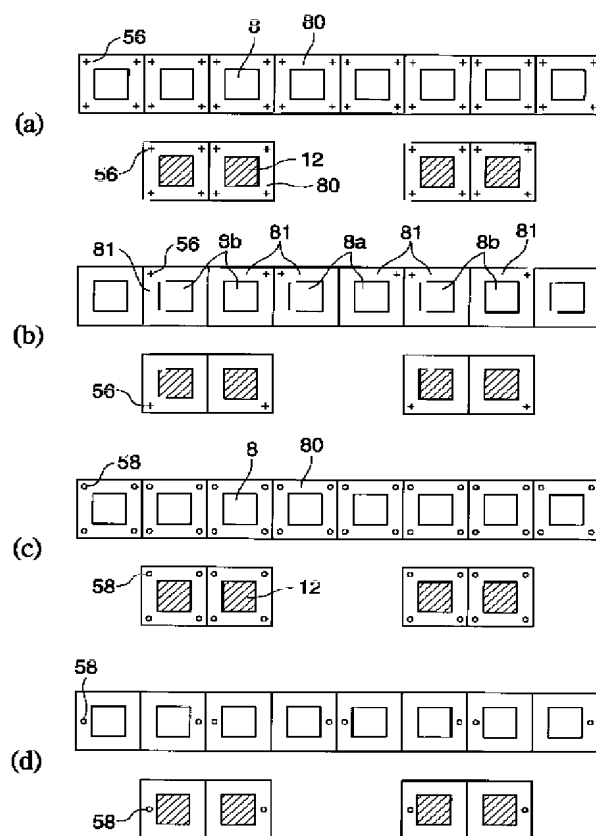
【図6】



【図 7】



【図 9】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	(参考)
// H O 1 M	8/10	H O 1 M	8/10

(72)発明者	宮本 勉	Fターム(参考)	5H026 AA08 BB00 BB03 EE18 EE19
	長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内		